

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-077733

(43)Date of publication of application : 14.03.2000

(51)Int.Cl.

H01L 41/083  
G01L 1/16

(21)Application number : 10-241339

(71)Applicant : HITACHI LTD

(22)Date of filing : 27.08.1998

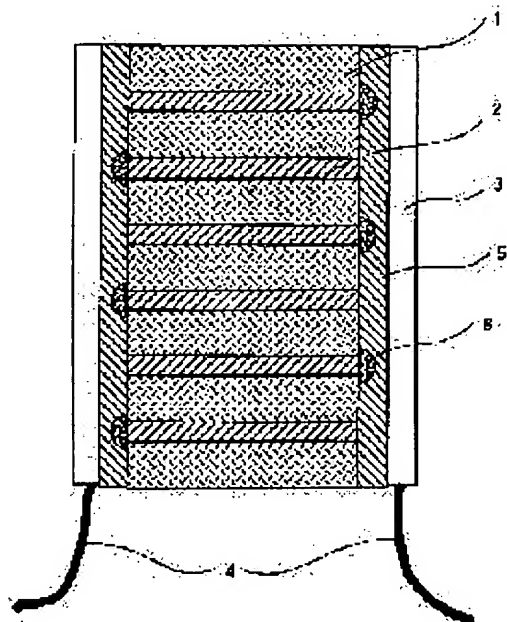
(72)Inventor : MIYATA MOTOYUKI  
SHIONO OSAMU  
HAYASHIBARA MITSUO  
SUZUKI HIDEO  
WATABIKI SEIJI  
ISHIDA TOMIO

## (54) LAMINATED PIEZOELECTRIC ELEMENT

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To improve reliability of a laminated piezoelectric element extending over a long period even under a high temperature, by a method wherein piezoelectric materials having a piezoelectricity and internal electrodes having a conductivity are alternately laminated to form integrally the piezoelectric materials, and the internal electrodes and stress relaxation layers are respectively formed on the vertical side surfaces of the laminated material in the lamination direction.

**SOLUTION:** Piezoelectric materials 1 having a piezoelectricity and internal electrodes 2 having a conductivity are alternately laminated to form integrally the materials 1, the external electrodes 2 is connected to and the eternal electrodes 2 every other layer, and lead wires 4 are respectively connected with these electrodes 3. Moreover, stress relaxation layers 5, which are provided mixedly an inorganic porous material containing an silicon oxide as its main component with a conductive material containing conductive grains, such as silver grains palladium grains, are respectively formed between the materials 1 and the electrodes 3, between the electrodes 2 and the electrodes 3 and between insulating layers 8 formed on the electrodes 2 and the electrodes 3. As a result, even in the case where a laminated piezoelectric element is used extending over a long period under a high voltage, the reliability of the piezoelectric element can be improved.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2000-77733  
(P2000-77733A)

(43) 公開日 平成12年3月14日 (2000.3.14)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	マークシート (参考)
H 0 1 L 41/083		H 0 1 L 41/08	S
G 0 1 L 1/16		G 0 1 L 1/16	C

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平10-241339

(22) 出願日 平成10年8月27日 (1998.8.27)

(71) 出願人 000005108

株式会社日立製作所

東京都千代田区神田駿河台四丁目6番地

(72) 発明者 宮田 素之

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株

式会社日立製作所日立研究所内

(72) 発明者 塩野 修

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株

式会社日立製作所日立研究所内

(74) 代理人 100068504

弁理士 小川 勝男

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 積層型圧電素子

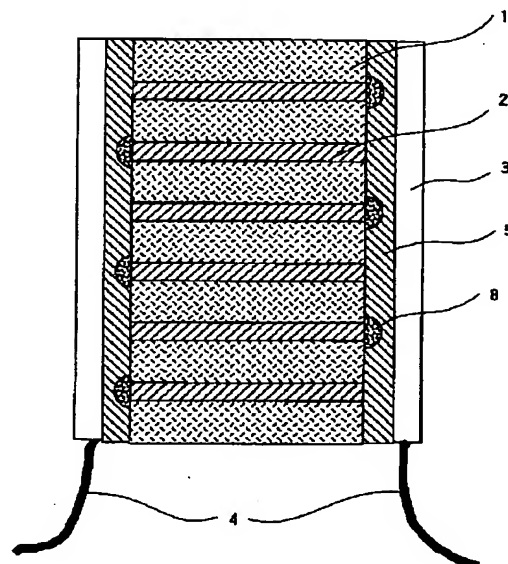
(57) 【要約】

【課題】 高温下でも信頼性の高い圧電素子を提供することである。

【解決手段】 圧電性を有する圧電材と導電性を有する導電材を交互に積層一体化してなる積層型圧電素子において、積層方向に垂直な側面に応力緩和層を形成したことを特徴とする積層型圧電素子。

【効果】 本発明の構造を用いることにより、高温下でも信頼性の高い圧電素子を提供することができる。

図 1



1…圧電材 2…内部電極 3…外部電極  
4…リード線 5…応力緩和層 8…絶縁層

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】圧電性を有する圧電材と導電性を有する電極を交互に積層してなる積層型圧電素子において、積層方向に垂直な側面に応力緩和層を形成したことを特徴とする積層型圧電素子。

【請求項2】請求項1に記載の積層型圧電素子において、応力緩和層が無機質多孔体と導電性物質が混在したものであることを特徴とする積層型圧電素子。

【請求項3】請求項1、2に記載の積層型圧電素子において、応力緩和層の厚さが100 $\mu$ mより小さいことを特徴とする積層型圧電素子。

【請求項4】請求項1乃至3のいずれかに記載の積層型圧電素子において、応力緩和層に導電性を有する粒子が含まれていることを特徴とする積層型圧電素子。

【請求項5】請求項1乃至4のいずれかに記載の積層型圧電素子において、応力緩和層に含まれている導電性を有する粒子の粒径が5 $\mu$ mより小さいことを特徴とする積層型圧電素子。

【請求項6】請求項1乃至5のいずれかに記載の積層型圧電素子を有することを特徴とするエンジン用燃料供給装置。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、アクチュエータ又はセンサーなどとして用いる積層型圧電素子に関する。

【0002】

【従来の技術】電気的エネルギーと機械的エネルギーを相互に変換可能な圧電素子の構造として、圧電材と内部電極を交互に積層した積層型圧電素子が報告されている。

【0003】一例として、特開平6-232466号公報では内部電極と外部電極の間にガラスフリットを含有する導電部を形成することが報告されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】特開平6-232466号公報に記載の積層型圧電素子では、内部電極と外部電極の間に形成した導電部のガラスフリット量を徐々に変化した多層とすることにより、両者の間を好適に接合しているが、高温下で長期間に渡って使用する場合、上記多層が均質化して単層となり、室温近傍で使用する場合に比べて破壊しやすくなるという問題がある。

【0005】本発明は高温下でも信頼性の高い圧電素子を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成する第1の特徴は、圧電性を有する圧電材と導電性を有する内部電極を交互に積層一体化してなる積層型圧電素子において、積層方向に垂直な側面に応力緩和層を形成することである。

【0007】上記目的を達成する第2の特徴は、圧電性

を有する圧電材と導電性を有する内部電極とを交互に積層一体化してなる積層型圧電素子において、積層方向に垂直な側面に形成する応力緩和層が無機質多孔体と導電性物質が混在した構造を有することである。

【0008】上記目的を達成する第3の特徴は、圧電性を有する圧電材と導電性を有する内部電極とを交互に積層一体化してなる積層型圧電素子において、積層方向に垂直な側面に形成する応力緩和層の厚さが100 $\mu$ mより小さいことである。

【0009】上記目的を達成する第4の特徴は、圧電性を有する圧電材と導電性を有する内部電極とを交互に積層一体化してなる積層型圧電素子において、積層方向に垂直な側面に形成する応力緩和層を構成する導電性物質に導電性を有する粒子が含まれていることである。

【0010】上記目的を達成する第5の特徴は、圧電性を有する圧電材と導電性を有する内部電極とを交互に積層一体化してなる積層型圧電素子において、積層方向に垂直な側面に形成する応力緩和層を構成する導電性物質に含まれている導電性を有する粒子の粒径が5 $\mu$ mより小さいことである。

【0011】上記目的を達成する第6の特徴は、上記第1から5の特徴に記載の積層型圧電素子を用いたエンジン用燃料供給装置である。

【0012】

【発明の実施の形態】図1は、本発明の実施例の積層型圧電素子の構成を示す模式断面図である。本実施例の積層型圧電素子では圧電性を有する圧電材1と外部電極3の間、導電性を有する内部電極2と外部電極3との間、内部電極2上に形成された絶縁層8と外部電極3との間に応力緩和層5が形成されている。さらに詳細には図2に示すように、応力緩和層5が3次的に連続した空隙を有する無機質多孔体6と導電性物質7が混在した構造を有している。導電性物質7は無機質多孔体6の3次的に連続した空隙に存在し、3次的に導電経路を有するため、本実施例の応力緩和層は導電性を損なうことはない。本実施例ではこのような応力緩和層を有しているため、従来材の課題であった変形量や熱膨張係数差に起因した残留応力を、応力緩和層を構成する無機質多孔質自体の変形、又は導電性物質による滑り変形などにより緩和することができる。また無機質多孔体と導電性物質を交互に積層した積層構造を形成することにより、多孔体間での導電性物質による滑りも発生してより残留応力を緩和することができる。応力緩和層の厚さは、構成する無機質多孔体や導電性物質の物性により異なるため一概には言えないが100 $\mu$ mより小さいことが望ましい。応力緩和層の厚さがこれ以上になると、応力緩和層と圧電材の熱膨張係数差に起因する残留応力が大きくなり、両者の界面で剥離を起こすためである。

【0013】本実施例の積層型圧電素子は、従来の積層型圧電素子に比べて高温での動作が可能であるため、例

えば自動車用エンジンの燃料供給装置などに用いることができる。

【0014】応力緩和層の例として、酸化ケイ素を主成分とする無機質多孔体と銀粒子やパラジウム粒子などの導電粒子を含んだ導電性物質が混在したものが挙げられる。このような応力緩和層の形成方法として、例えばゾルゲル法が挙げられる。すなわち銀粒子やパラジウム粒子などの導電粒子を含んだゾル溶液と酸化ケイ素を含んだゾル溶液を塗布し、これを加熱して応力緩和層を形成する。ゾル状態からゲル状態への変化の際、ゲル溶液中の溶媒成分が除去され、酸化ケイ素を主成分とする無機質多孔体と銀粒子やパラジウム粒子などの導電粒子を含んだ導電性物質が混在した応力緩和層が形成される。また、導電粒子を含んだゾル溶液と酸化ケイ素を含んだゾル溶液を交互に塗布することにより、銀粒子やパラジウム粒子などの導電粒子を含んだ導電性物質とケイ素を主成分とする多孔体が交互に積層した構造も形成できる。加熱温度はゾル溶液の成分や銀粒子、パラジウム粒子などの導電粒子の種類や量により異なるため、一概には言えないが、概ね500℃以下である。また各ゾル溶液に適した所定の波長の光を照射したのち加熱することにより、加熱温度を低下することもできる。

【0015】次に、本実施例材と比較材との特性を評価した結果を示す。

【0016】本実施例材は、まずチタン酸ジルコン酸塩（PZT）を主成分とする圧電セラミックス粉末に有機バインダーを添加し、これを有機溶媒中に分散させてスラリーを作り、テープキャスト法により膜厚約150μmのセラミックスシートを作る。このセラミックスシートに銀とパラジウム粉末を混合したペーストをスクリーン印刷で形成した。このシートを所定の枚数積層し、最後に上記ペーストを印刷していないセラミックスシートを乗せて熱加圧して一体化した。これを所定の寸法に切断後、加熱焼成して積層体を作製した。積層体の積層方向に垂直な4つの側面のうち、平行する2つの側面に露出している内部電極上にガラスペーストを塗布加熱して一層毎に絶縁層を形成した。絶縁層形成後の側面に銀粒子とパラジウム粒子を20%含んだゾル溶液と酸化ケイ素を20%含んだゾル溶液を交互に塗布後、200℃で30分加熱して応力緩和層を形成した。その後応力緩和層上に外部電極及びリード線を形成した。外部電極には無機高温接着剤を、リード線には銅線を用い、無機高温接着剤で接合した。

【0017】図3のように、本実施例材に対する比較材は、本実施例と同様にして作製した積層体の側面に絶縁層を形成した後、応力緩和層を形成せずに外部電極及びリード線を形成した。

【0018】この積層型圧電素子は図3に示すように内部電極2が一層おきに外部電極3に接続されており、さらにこの外部電極3にリード線4が接続されている。リ

ード線4間に電圧を印加すると、お互いに隣接する内部電極2間に異符号の電荷が誘起され内部電極2間の圧電材1に電圧がかかり積層方向に変位を生じる。この圧電材1の変形に対して、側面に形成されている外部電極3はほとんど変形しないため、両者の間で変形量に起因した残留応力が形成される。またこの積層型圧電素子を高温下で使用する場合、圧電材1と外部電極3、内部電極2と外部電極3、絶縁層8と外部電極3との熱膨張係数差に起因した残留応力が両者の間で発生し、室温近傍で利用する場合に較べて容易に破壊を招く恐れがある。

【0019】評価方法としては、150℃に加熱したシリコンオイル中に本実施例材、比較材を浸漬し、周波数100Hzの正弦波で100V印加して各素子を駆動させた。その結果、比較材は繰り返し数10°回以下で破壊したのに対して、本実施例材は10°回以上でも異常は見られなかった。

【0020】本実施例材を評価試験後、TEM（透過型電子顕微鏡）を用いて応力緩和層を観察したところ、図2に模式的に示したように3次的に連続した空隙を有する酸化ケイ素を主成分とする多孔体と銀粒子やパラジウム粒子を含んだ導電性物質が混在した構造を示していた。この応力緩和層の厚さは10μm以下であった。ちなみに銀粒子とパラジウム粒子を含んだゾル溶液と酸化ケイ素を含んだゾル溶液の塗布量を増やして、応力緩和層の厚さが100μm以上の素子を作製したところ、150℃に加熱したシリコンオイル中に投入した直後に圧電材と外部電極との間で剥離を起こし、評価するに至らなかった。

【0021】応力緩和層を構成する導電性物質が良好な潤滑作用を示し、残留応力低減に有効に作用するためには、導電性物質のなかに微細な導電性を有する粒子が含まれていることが望ましい。上記の評価実験でも、発明材中の導電性物質には粒径が1μmより小さな銀粒子とパラジウム粒子が含まれていた。比較のため、5μmより大きい銀粒子とパラジウム粒子を含んだゾル溶液を用いて、同様にして導電性物質中に5μmより大きい銀粒子とパラジウム粒子を含んだ素子を作製、評価したところ、繰り返し数10°回以下で破壊が発生した。

【0022】また、本実施例の積層型圧電素子をガソリンエンジンの燃料供給装置に組み込み、ガソリン噴射用アクチュエータとしての評価試験も行った。試験は120℃中、エンジンの回転数500～10000rpmに対応してガソリン噴射挙動を調べた。その結果、従来用いられている電磁式アクチュエータに較べて、全ての回転数領域で入力信号に対するガソリン噴射応答速度が1/5以下に低減され、本実施例材がエンジンの燃料供給装置部品として優れた特性を示すことが明らかとなった。

【0023】

【発明の効果】本発明によれば高温下でも信頼性の高い圧電素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例の積層型圧電素子の構造の模式図。

【図2】本発明の実施例の積層型圧電素子の応力緩和層近傍の構造の模式図。

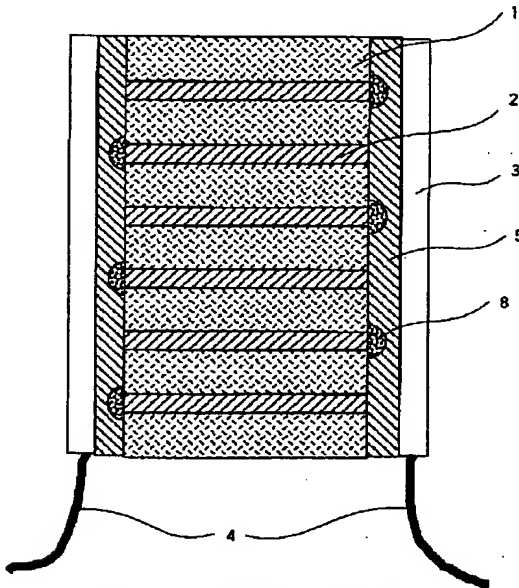
\*【図3】比較例の積層型圧電素子の構造の模式図。

【符号の説明】

1…圧電材、2…内部電極、3…外部電極、4…リード線、5…応力緩和層、6…無機質多孔体、7…導電性物質、8…絶縁層。

【図1】

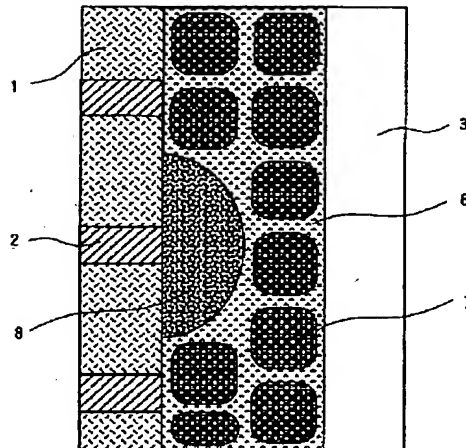
図 1



1…圧電材 2…内部電極 3…外部電極  
4…リード線 5…応力緩和層 8…絶縁層

【図2】

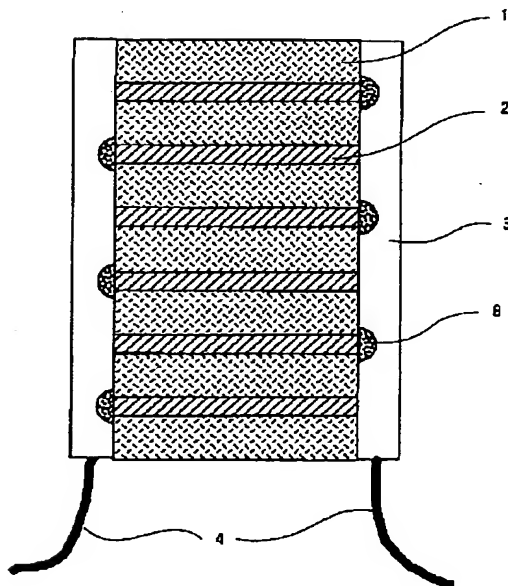
図 2



6…無機質多孔体 7…導電性物質

【図3】

図 3



## フロントページの続き

(72)発明者 林原 光男  
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株  
式会社日立製作所日立研究所内  
(72)発明者 鈴木 秀夫  
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株  
式会社日立製作所日立研究所内

(72)発明者 綿引 誠次  
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株  
式会社日立製作所日立研究所内  
(72)発明者 石田 富雄  
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株  
式会社日立製作所日立研究所内